

Anwendung der Koinzidenzmethode zur Bestimmung
von totalen Konversionskoeffizienten
von Gamma-Strahlen

INAUGURALDISSERTATION

zur Erlangung der Würde eines Doktors der Philosophie
vorgelegt der Philosophisch-Naturwissenschaftlichen
Fakultät der Universität Basel

von

ARMIN WALTHERT

aus Willisau-Stadt (LU)

Basel

Buchdruckerei Birkhäuser AG

1965



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41546706_0064

Anwendung der Koinzidenzmethode zur Bestimmung
von totalen Konversionskoeffizienten
von Gamma-Strahlen

INAUGURALDISSERTATION

zur Erlangung der Würde eines Doktors der Philosophie
vorgelegt der Philosophisch-Naturwissenschaftlichen
Fakultät der Universität Basel

von

ARMIN WALTHERT

aus Willisau-Stadt (LU)

Basel

Buchdruckerei Birkhäuser AG

1965

Genehmigt von der Philosophisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät auf Antrag
der Herren Professoren Dr. E. BAUMGARTNER und Dr. P. HUBER.

Basel, den 2. März 1965

Prof. Dr. H. ANNAHEIM
Dekan



Anwendung der Koinzidenzmethode zur Bestimmung von totalen Konversionskoeffizienten

Summary. We have determined the total conversion coefficients for gamma-rays by the following method. The source strength of the sample was measured by β - γ -coincidences, and the detection efficiency of the scintillation counter had been calculated. From the knowledge of these two numbers and the counting rate in the detector, the relative intensity of γ -rays can be ascertained. For the transition from the first excited state to the ground state we obtain for: ^{129}Xe : $\alpha = 21,0 \pm 1,0$, ^{141}Pr : $\alpha = 0,45 \pm 0,04$, ^{198}Hg : $\alpha = 0,047 \pm 0,017$, ^{203}Tl : $\alpha = 0,222 \pm 0,015$. These values are compared with present theoretical and experimental values.

1. Einleitung

Konversionskoeffizienten wurden häufig zur Bestimmung der Drehimpuls- und Paritätsänderung bei Gammastrahlübergängen benutzt. Kürzlich haben CHURCH und WENESER¹⁾ auf den Einfluss der Kernstruktur auf die Grösse des Konversionskoeffizienten hingewiesen. Da die experimentelle Bestimmung dieses Effektes eine grosse Genauigkeit der Konversionskoeffizienten erfordert, halten wir es für interessant, die Resultate der vorliegenden, neuen experimentellen Methode mit denjenigen von Beta-spektrographen²⁾ und Szintillationszählern³⁾ zu vergleichen.

In einem ersten Abschnitt wird das Prinzip des experimentellen Verfahrens erläutert und in den beiden folgenden Abschnitten auf die Kerne ^{141}Pr , ^{129}Xe , ^{198}Hg , ^{203}Tl angewandt. In allen vier Fällen erhalten wir Übereinstimmung innerhalb der Fehlergrenzen mit den Werten anderer Methoden.

2. Allgemeines zur Bestimmung von totalen Konversionskoeffizienten

Ein beliebiges radioaktives Isotop möge durch Beta- und Gammazerfall – wie Figur 1 zeigt – in den Grundzustand übergehen. Es sei zuerst die Bestimmung des Konversionskoeffizienten mittels Gammazählung erläutert und nachher mittels Konversionselektronenzählung.

Zunächst interessieren wir uns also nur für die Gammastrahlung und nehmen an, dass vom Zähler andere Strahlenarten nicht detektiert werden.

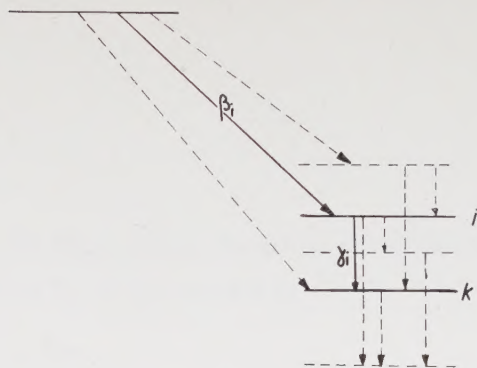


Fig. 1

Beliebiges Zerfallsschema (β_i sind die Betateilchen, γ_i die Gammaquanten)

Die Beziehung zwischen den im Szintillationszähler registrierten Gammaquanten N_γ und der Quellstärke N des Präparates ist:

$$N_\gamma = N \sum_i W_{\gamma i} V_{\gamma i} a_i y_i. \quad (1)$$

Dabei wurde angenommen, dass das Auftreten von Summenimpulsen – wie sie in der Arbeit von FROSC, HUBER und WIDDER⁴⁾ definiert sind – vernachlässigbar klein ist.

Zur Messung der Quellstärke N wird ein zweiter Zähler in Koinzidenz⁵⁾ mit dem ersten verwendet. Die Quellstärke N ergibt sich dann aus dem Produkt der Einzelimpulsraten dividiert durch die Koinzidenzimpulsrate.

$$N = \frac{N_1 N_2}{N_{12}} \frac{K}{B} \quad (2)$$

Der Korrekturfaktor K/B ist in der Arbeit von FROSC et al.⁴⁾⁶⁾ näher beschrieben. In diesen Arbeiten sind auch die Details der verwendeten Apparatur erläutert, es soll deshalb im folgenden nicht näher auf die Quellstärkenbestimmung eingegangen werden.

Die Grösse $W_{\gamma i}$ in Gleichung 1 ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein von der Quelle ausgestrahltes γ_i -Quant einen Lichtimpuls im Szintillator erzeugt. $W_{\gamma i}$ wird im nachfolgenden kurz Gammaansprechwahrscheinlichkeit genannt und wird entsprechend der Arbeit von FROSC et al.⁴⁾ berechnet.

a_i ist der Bruchteil der Zerfälle, die zum i -ten Niveau führen und von dort aus das k -te Niveau erreichen.

y_i ist die Häufigkeit, dass beim Übergang vom Niveau i zum Niveau k Gammastrahlung ausgesandt wird. Da der totale Konversionskoeffizient α_i das Verhältnis der Anzahl der Konversionselektronen zu derjenigen der Gammas ist, gilt

$$\alpha_i = \frac{1 - y_i}{y_i}. \quad (3)$$

$V_{\gamma i}$ ist die Zählwahrscheinlichkeit und hat folgende Bedeutung: Es werden nicht alle im Szintillator erzeugten Lichtimpulse der i -ten Gammastrahlung gezählt. Wenn –

wie in Figur 2 eingezeichnet – nur Impulse grösser als E_1 gezählt werden (schraffierte Fläche), so gibt das Verhältnis der schraffierten zur gesamten Spektrumsfläche die Zählwahrscheinlichkeit $V_{\gamma i}$.

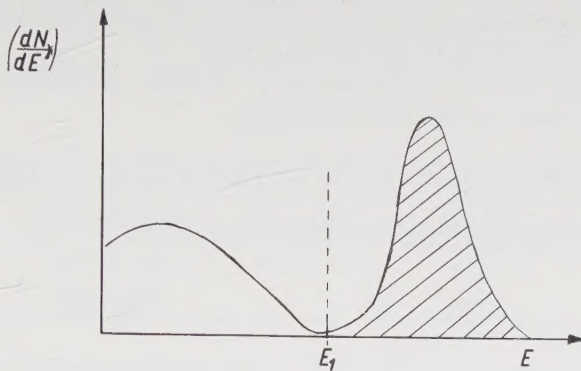


Fig. 2

Zur Bestimmung von $V_{\gamma i}$. Comptonsspektrum und Photolinie einer Gammastrahlung.

E_1 : Diskriminatorpegel.

Wenn nur eine Gammakomponente auftritt, so ist die Grösse $V_{\gamma i}$ einfach zu ermitteln. Treten aber zwei oder mehrere Gammakomponenten auf, so überlagern sich die Comptonsspektren und die Photolinien. Die Grössen $V_{\gamma i}$ werden dann schwieriger zu bestimmen sein.

Anstelle der Häufigkeit y_i kann auch die Häufigkeit $x_i = 1 - y_i$ der Konversionselektronen ermittelt werden. Ohne Betaabsorber werden im Szintillator Betateilchen und Konversionselektronen nebst Gammaquanten gezählt. Die Gleichung 1 muss erweitert werden.

$$N_{\beta, \gamma, e} = N \left(\sum_i W_{\gamma i} V_{\gamma i} a_i y_i + \sum_i W_{\beta i} V_{\beta i} b_i + \sum_i W_{e i} V_{e i} a_i x_i \right) \quad (4)$$

Eine Bestimmung der Häufigkeiten x_i lässt sich der vielen Summenterme wegen nur bei einfachen Zerfallsschemata durchführen. Durch Verwendung von zwei Zählern in Koinzidenz lässt sich die Anzahl der Summenterme verringern. Ein Beispiel dieser Art wird in Abschnitt 4 (^{203}Tl) gezeigt.

Ob die zuerst diskutierte Zählung von Gammastrahlung oder die Zählung von Elektronen eine genauere Bestimmung des Konversionskoeffizienten liefert, lässt sich nicht generell entscheiden. Die Wahl hängt wesentlich vom Zerfallsschema ab. Sind aber beide Methoden möglich, so wird für $\alpha_i > 1$ die Gammazählung, für $\alpha_i < 1$ die Elektronenzählung zu einer genaueren Bestimmung des Konversionskoeffizienten führen.

Im nachfolgenden Abschnitt wird die erste Methode für ^{141}Pr , ^{129}Xe und ^{198}Hg verwendet. Im Abschnitt 4 wird durch Elektronenzählung der totale Konversionskoeffizient der 279-keV Gammastrahlung von ^{203}Tl bestimmt.

3. Bestimmung des totalen Konversionskoeffizienten mittels Gammazählung

Die untenstehenden Angaben treffen auf alle folgenden Messungen zu und seien deshalb hier zusammengefasst:

- Die Quellstärken werden mit Beta-Gammakoinzidenzen gemessen. Dabei werden im Betazähler Konversions- und Augerelektronen wegdiskriminiert.
- Als Szintillator wird ein NaJ-Kristall verwendet.
- Die Korrekturen für die Summenimpulse, Totzeit, Richtungskorrelation und Bremsstrahlung waren vernachlässigbar klein.

3.1. Der totale Konversionskoeffizient der 145-keV Gammastrahlung von ^{141}Pr

Das Zerfallsschema des Ausgangsisotopes zeigt Figur 3.

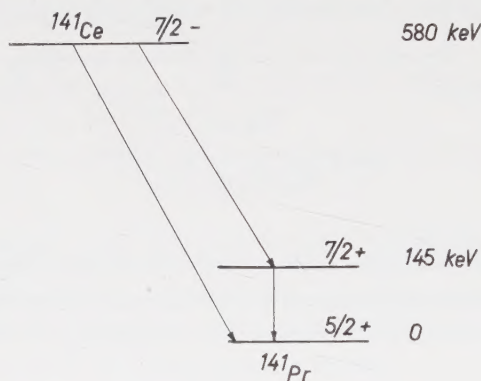


Fig. 3

Zerfallsschema von ^{141}Ce

Aus Gleichung 1 folgt für die Häufigkeit y

$$y = \frac{N_\gamma}{N W_\gamma V_\gamma a} \quad (5)$$

Es wurde zunächst die Grösse $y a$ für verschiedene Ansprechwahrscheinlichkeiten W_γ bestimmt (Tabelle 1).

Tabelle 1

Die Grösse $y a$ für verschiedene W_γ ($V_\gamma = 0,85 \pm 0,02$)

$W_\gamma \cdot 10^{-3}$	7,51	5,30	4,22	3,30
$y a$	0,486	0,500	0,513	0,490

Die Quellstärke N betrug: $(2,20 \pm 0,03) \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$. Der Fehler im Produkt $y a$ rührt hauptsächlich von V_γ her. Der Mittelwert dieser Messungen ergab $y a = 0,497 \pm 0,016$.

Zur Berechnung des Konversionskoeffizienten wird nach Gleichung 5 der Wert von a benötigt. Als Mittelwert vorliegender Messungen³⁾⁷⁻¹⁰⁾ erhält man $a = 0,72$.

Diese sind aber gegenseitig nicht in Übereinstimmung, so dass wir auf eine Fehlerangabe verzichten.

In Tabelle 2 wird der erhaltene Konversionskoeffizient einerseits mit experimentellen Werten³⁾¹⁰⁾ sowie mit theoretischen Werten¹¹⁾¹²⁾ für eine reine MI-Strahlung¹³⁾ verglichen. Die Werte sind in Übereinstimmung unter sich und mit den errechneten Werten; dabei wird der Wert von ZORZOLI³⁾ durch eine Änderung des a -Wertes nicht beeinflusst, im Gegensatz zur vorliegenden Messung und derjenigen von JOSHI et al.¹⁰⁾.

Tabelle 2

Vergleich der totalen Konversionskoeffizienten für die 145-keV Gammastrahlung des ^{141}Pr

	ZORZOLI ³⁾	JOSHI et al. ¹⁰⁾	Vorl. Arbeit	ROSE ¹¹⁾	SLIV et al. ¹²⁾
α	0,43	$0,39 \pm 0,04$	$0,45 \pm 0,04$	0,438	0,442
a	0,67	$0,78 \pm 0,02$			

3.2. Der totale Konversionskoeffizient der 39-keV Gammastrahlung von ^{129}Xe

^{129}I zerfällt durch Emission eines Betateilchens und Gammaquants, wie Figur 4 zeigt.

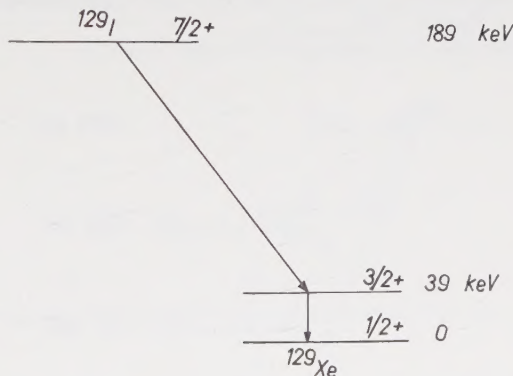


Fig. 4

Zerfallsschema von ^{129}I

Mit Hilfe der Gleichung 1 können wir folgende Beziehung für die Häufigkeit der Gammastrahlung herleiten.

$$y = \frac{N_{r,\gamma} - N W_r V_r z_r}{N W_\gamma V_\gamma}, \quad (6)$$

wo $N_{r,\gamma}$ gleich der Anzahl der registrierten Röntgen- und Gammaquanten ist.

Der Ausdruck $N W_r V_r z_r$ ist gleich der Anzahl der gezählten charakteristischen Röntgenquanten, wobei z_r die Wahrscheinlichkeit ist, dass sowohl ein K-Elektron als auch ein charakteristisches Röntgenquant ausgesandt wird.

Zur Messung der Grösse y benützen wir vor dem NaJ-Szintillator einen Aluminiumabsorber (2 cm), so dass der Anteil der Röntgenquanten gegenüber der Gammastrahlung erniedrigt wird. Die Korrektur $N W_r V_r z_r$ ist aber immer noch so gross,

dass die Grösse z_r experimentell bestimmt wurde. z_r lässt sich ohne Absorber ermitteln, da der Anteil der charakteristischen Röntgenstrahlung grösser ist als der der Gammastrahlung. Es ergab sich: $z_r = 0,82 \pm 0,01$, der mit dem erwarteten Wert, welcher das Produkt aus Fluoreszenzausbeute¹⁴⁾ und der Häufigkeit x_K ist.

Für die Häufigkeit y der 39-keV Gammastrahlung erhielten wir:

$$y = 0,046 \pm 0,002, \quad \text{das heisst} \quad \alpha = 21,0 \pm 1,0.$$

Dieser Wert ist in Übereinstimmung mit $\alpha_K = 22 \pm 4$ und $K/L = 10$ von DER MATEOSIAN und WU¹⁵⁾. Weil die Gammaenergie vergleichbar mit der K -Elektronenbindungsenergie ist, kann α_K nicht aus den Tafeln von ROSE¹¹⁾ oder SLIV¹²⁾ entnommen werden. Unter Annahme eines reinen M1-Überganges ergibt sich nach SPINRAD und KELLER¹⁶⁾ $\alpha_K = 19$ und damit unter Benützung der L -Konversionskoeffizienten von ROSE oder SLIV $\alpha = 20$, in Übereinstimmung mit dem Experiment. Der erwartete Wert für reine M1-Strahlung von K/L ist 16. Dies ist höher als die gemessenen Werte^{15) 17)}. Eine Beimischung von wenigen Prozenten E2-Strahlung ergibt Übereinstimmung mit dem experimentellen K/L -Wert, sowie mit dem vorliegenden Wert des totalen Konversionskoeffizienten.

3.3. Der totale Konversionskoeffizient der 411-keV Gammastrahlung von ^{198}Hg

Das Zerfallsschema des Ausgangsisotopes zeigt Figur 5.

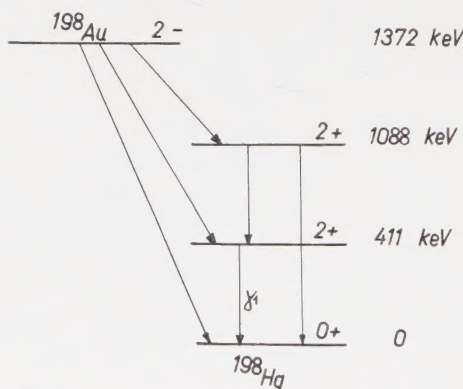


Fig. 5

Zerfallsschema von ^{198}Au

Für die Häufigkeit der γ_1 -Strahlung lässt sich folgende Gleichung herleiten:

$$y_1 = \frac{N_{\gamma_1}}{N W_{\gamma_1} V_{\gamma_1} a_1} \quad (7)$$

Unter Benützung der Verzweungsverhältnisse¹⁸⁾ ergibt sich a_1 zu 0,998 für das obige Zerfallsschema.

Für die Häufigkeit der 411-keV Gammastrahlung erhielten wir:

$$y = 0,955 \pm 0,015, \quad \text{das heisst} \quad \alpha = 0,047 \pm 0,017.$$

Unser Resultat ist in Übereinstimmung mit dem kürzlich publizierten und genaueren Wert von LEWIN, NOOIJEN, VAN EIJK, and WAPSTRA¹⁸⁾, welche die früher gefundene Diskrepanz zwischen Theorie und Experiment beheben konnten.

Bei der Kleinheit des vorliegenden Konversionskoeffizienten wäre ein genaueres Resultat durch Bestimmung der Häufigkeit der Konversionselektronen zu erwarten. Das war nicht möglich, da die Konversionselektronenlinien vom Betaspektrum überlagert werden.

4. Bestimmung des totalen Konversionskoeffizienten mittels Konversionselektronen am Beispiel der 279-keV Gammastrahlung von ^{203}Tl

Die Bestimmung der Häufigkeit x der Konversionselektronen ist nur für einfache Zerfallsschemata möglich (Gl. 4). Das radioaktive Isotop ^{203}Hg erfüllt diese Bedingung (Figur 6).

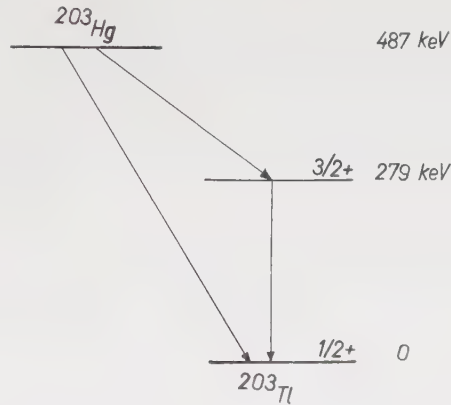


Fig. 6

Zerfallsschema von ^{203}Hg . Der Betaübergang zum Grundzustand hat eine Häufigkeit von 0,004%.

Mit dünnen (das heisst Dicke gleich der Reichweite der Elektronen) organischen Szintillatoren erreicht man eine kleine Gammaansprechwahrscheinlichkeit, und man erhält ein Spektrum, wie es Figur 7 zeigt. Mit Hilfe eines Betaabsorbers lassen sich die ansprechenden Gammas experimentell ermitteln.

Zur Verwendung kommen zwei Betazähler, die in Koinzidenz geschaltet sind. (Die Koinzidenzanordnung dient hier nicht nur zur Quellstärkenbestimmung, sondern auch zur Ermittlung der Grösse x .)

Die Gleichungen für die Einzelpulsraten im ersten bzw. zweiten Zähler sowie für die Koinzidenzpulsrate lauten:

$$N_i = N W_{i\beta} V_{i\beta} + N W_{ie} V_{ie} x \quad (i = 1, 2) \quad (8a)$$

$$N_{12} = N K_{\theta} (W_{1\beta} V_{1\beta} W_{2e} V_{2e} x + W_{2\beta} V_{2\beta} W_{1e} V_{1e} x) . \quad (8b)$$

Die Korrekturgrösse K_{θ} ⁴⁾ für die β - e -Richtungskorrelation ist in diesem Falle gleich eins.

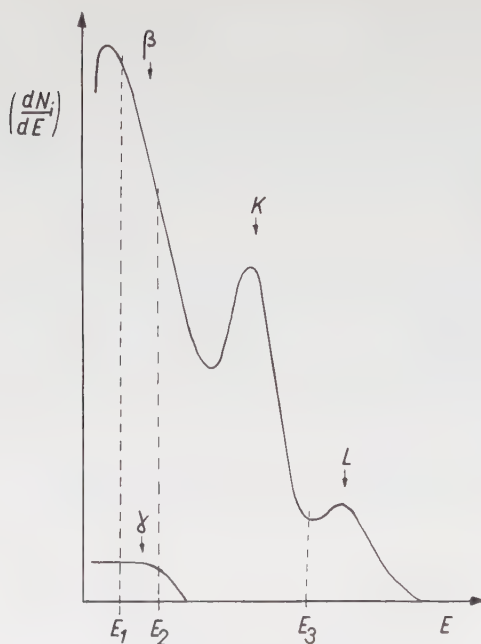


Fig. 7

β : Betaspektrum, K, L : Konversionslinien, γ : Gammaskpektrum

Im ersten Zähler wird so diskriminiert (Pegel E_1 in Figur 7), dass der grösste Teil der Konversionselektronen gezählt wird. Im zweiten gibt es zwei Möglichkeiten:

1. Man zählt nur Betateilchen (Pegel E_1 bis E_2), das heisst $V_{2e} = 0$. Mit dieser Bedingung folgt aus den Gleichungen 8a, 8b für die Häufigkeit:

$$x = \frac{1}{W_{1e} V_{1e}} (N_{12}/N_2) . \quad (9)$$

2. Es werden nur Elektronen (Pegel E_3), das heisst $V_{2\beta} = 0$ gezählt. Wir erhalten für die Häufigkeit:

$$x = \frac{1}{W_{1e} V_{1e}} (N_1/N - N_{12}/N_2) . \quad (10)$$

Eine weitere Möglichkeit bietet sich in der Detektion von Gammas anstelle der Elektronen im zweiten Zähler:

3. Man erhöht die Gammaansprechwahrscheinlichkeit durch Wahl eines dicken Szintillators und absorbiert die Elektronen und die Betateilchen.

Die Gleichung im zweiten Zähler – im ersten bleibt sie gleich wie 8a – lautet:

$$N_2 = N W_{2\gamma} V_{2\gamma} \gamma , \quad (11)$$

und die Gleichung für die Koinzidenzimpulsrate lautet:

$$N_{12} = N K_{\theta} W_{2\gamma} V_{2\gamma} W_{1e} V_{1e} \gamma . \quad (12)$$

Daraus ergibt sich wieder die Beziehung (10) für x . Das Produkt $W_{1e} V_{1e}$ kann man mit einer Genauigkeit von 5% angeben. Die zufälligen Koinzidenzen wurden experimentell mit einem Verzögerungskabel ermittelt.

Alle drei Methoden sind mit dem gleichen relativen Fehler behaftet, und der Mittelwert dieser Messungen ergab sich zu:

$$x = 0,182 \pm 0,010, \quad \text{das heisst } \alpha = 0,222 \pm 0,015.$$

Messungen von NIJGH und WAPSTRA²⁾ mit einem Betaspektrographen ergeben $\alpha = 0,210 \pm 0,003$. Die Diskrepanz mit den von ROSE¹¹⁾ und SLIV¹²⁾ errechneten Werten sowie mit den Richtungskorrelationsexperimenten war lange Zeit Diskussionsgegenstand¹⁾. Es handelt sich hier um einen l -verbotenen M1-Übergang, bei dem die kernstrukturabhängige Korrektur des Konversionskoeffizienten relativ gross sein sollte. Wie LOMBARD¹⁹⁾ gezeigt hat, lassen sich alle experimentellen Ergebnisse durch die Kopplung des ungeraden Protons mit einer kollektiven Anregung des Thallium-Kernrumpfes erklären.

Diese Arbeit wurde durch die finanzielle Unterstützung des Schweizerischen Nationalfonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung ermöglicht.

Ich danke besonders Herrn Prof. Dr. P. HUBER und Herrn Prof. Dr. E. BAUMGARTNER für die Förderung dieser Arbeit und für die anregenden Diskussionen. Ebenfalls möchte ich Herrn Dr. R. FROSCH und Herrn Dr. F. WIDDER für ihre Mitarbeit danken.

Literaturverzeichnis

- 1) E. L. CHURCH, J. WENESER, *Ann. Rev. Nuclear Sci.* **10**, 193 (1960).
- 2) G. J. NIJGH and A. H. WAPSTRA, *Nuclear Physics* **9**, 545 (1958).
- 3) G. B. ZORZOLI, *Nuovo Cimento* **5**, 289 (1957).
- 4) R. FROSCH, P. HUBER und F. WIDDER, *Helv. Phys. Acta* **37**, 409 (1964).
- 5) K. P. MEYER, P. SCHMID und P. HUBER, *Helv. Phys. Acta* **32**, 423 (1959).
- 6) R. FROSCH, P. HUBER, F. WIDDER und A. WALTHER, *Helv. Phys. Acta* **36**, 622 (1963).
- 7) M. S. FREEDMANN and D. W. ENGELKEMEIER, *Phys. Rev.* **79**, 897 (1950).
- 8) E. KONDAIAH, *Arkiv Fysik* **4**, 81 (1952).
- 9) JAMES T. JONES, J. R. and E. N. JENSEN, *Phys. Rev.* **97**, 1031 (1955).
- 10) M. C. JOSHI, G. N. RAO, B. V. THOSAR, *Nuovo Cimento* **9**, 600 (1958).
- 11) M. E. ROSE, *Internal conversion coefficients*, Amsterdam (1958).
- 12) L. A. SLIV and I. M. BAND, α - β - γ -ray spectroscopy Vol. II, K. SIEGBAHN 1639 (1965).
- 13) E. AMBLER, R. P. HUDSON, G. M. TEMMER, *Phys. Rev.* **97**, 1212 (1955).
- 14) I. BERGSTRÖM and C. NORDLING, α - β - γ -ray spectroscopy Vol. II, K. SIEGBAHN 1523 (1965).
- 15) E. DER MATEOSIAN, C. S. WU, *Phys. Rev.* **95**, 458 (1954).
- 16) B. I. SPINRAD and L. B. KELLER, *Phys. Rev.* **84**, 1056 (1951).
- 17) S. THULIN, *Arkiv Fysik* **7**, 269 (1954).
- 18) W. H. G. LEWIN, B. VAN NOOIJEN, C. W. E. VAN EIJK, and A. H. WAPSTRA, *Nuclear Physics* **48**, 159 (1963).
- 19) R. J. LOMBARD, *Phys. Lett.* **9**, 254 (1964).

Curriculum vitae

Ich, ARMIN JOSEF WALTHERT, wurde am 5. Oktober 1934 als Sohn von Josef Walthert und Anna Felder (†) in Biel geboren. Ich bin Bürger von Willisau-Stadt (LU). Meine Eltern wohnen in Luzern, wo mein Vater eine Apotheke besitzt. Nach sechs Jahren Primarschule besuchte ich das Gymnasium in Sarnen, wo ich 1956 mit der Matura abschloss. Seither bin ich an der Universität in Basel immatrikuliert. Ich bestand die Examina in den Nebenfächern Chemie, Mathematik und Theoretischer Physik. Unter der kundigen Leitung der Herren Professoren E. Baumgartner und P. Huber entstand die vorliegende Dissertation.

Nebst den beiden erwähnten Professoren habe ich meine Ausbildung noch folgenden Dozenten zu verdanken: E. Baldinger, E. Miescher, H. Striebel, P. Diel, K. Alder, P. Scherrer, W. Verde, F. Cerulus, W. Czaja, H. Huber, E. Batschelet, R. Conzelmann, H. Erlenmeyer, T. Reichstein, A. Portmann, H. Dahn, A. Ostrowski, M. Eichler, R. Wagner und K. P. Meyer.

